

Patent Abstracts of Japan

PUBLICATION NUMBER : 05299796  
PUBLICATION DATE : 12-11-93

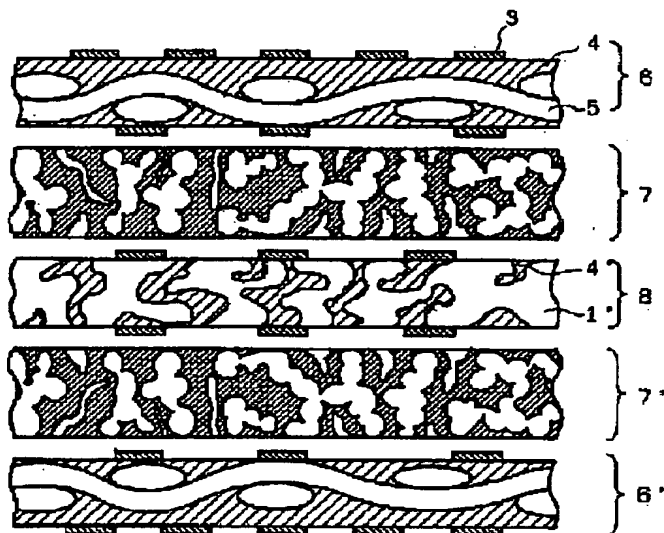
APPLICATION DATE : 22-04-92  
APPLICATION NUMBER : 04101514

APPLICANT : HITACHI CHEM CO LTD;

INVENTOR : YAMAGUCHI YUTAKA;

INT.CL. : H05K 1/03 H05K 3/38 H05K 3/46

TITLE : MULTI-LAYER PRINTED WIRING  
BOARD ADHESIVE SHEET AND  
METAL CLAD LAMINATED BOARD  
USING THE SHEET



ABSTRACT : PURPOSE: To obtain a metal coating laminated board which uses an adhesive sheet for a multi-layer printed wiring board whose  $\epsilon_y$  or  $\tan\theta$  is low by allowing thermosetting resin to be impregnated with a porous sintered sheet made of superpolymer polyethylene of low  $\epsilon$  and low  $\tan\theta$ .

CONSTITUTION: Multi-layer printed wiring board adhesive sheets 7 form interconnected cell-made multi-layer sheets by sintering UHMWPE particles and hold an adhesive force holding function with impregnated thermosetting resin 2 which is not cured yet. The bubbles contained in the sheets can be eliminated during multi-layer bonding work. The multi-layer printed wiring board before multi-layer bonding, which uses the adhesive sheets 7, comprises a metal coating laminated board 8 and the adhesive sheets 7. If it is necessary to secure mechanical strength, it is combined with a glass cloth reinforcing materials 6 and 6', thereby forming a stronger multi-layer printed board. This construction makes it possible to obtain the multi-layer printed board adhesive sheets and metal coating laminated board which are provided with a thin layer and a large peeling off capacity.

COPYRIGHT: (C)1993,JPO&Japio

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平5-299796

(43)公開日 平成5年(1993)11月12日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 5 K	1/03	J 7011-4E		
	3/38	E 7011-4E		
	3/46	T 6921-4E		
		G 6921-4E		

審査請求 未請求 請求項の数 4(全 5 頁)

(21)出願番号 特願平4-101514  
 (22)出願日 平成4年(1992)4月22日

(71)出願人 000004455  
 日立化成工業株式会社  
 東京都新宿区西新宿2丁1番1号  
 (72)発明者 田崎 聡  
 茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
 工業株式会社下館研究所内  
 (72)発明者 菅原 隆男  
 茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
 工業株式会社下館研究所内  
 (72)発明者 新井 正美  
 茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
 工業株式会社下館研究所内  
 (74)代理人 弁理士 若林 邦彦

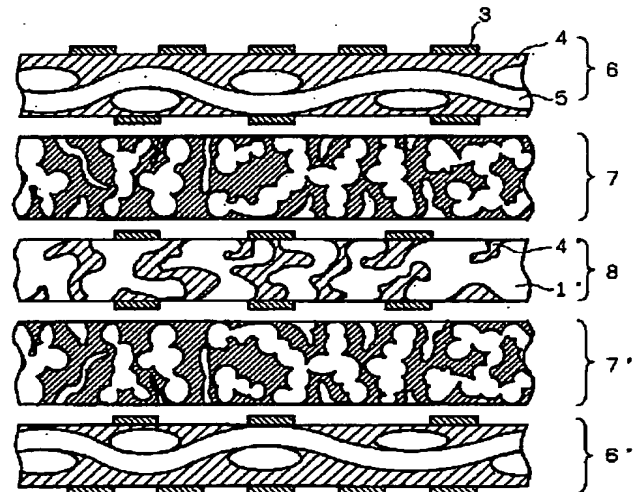
最終頁に続く

(54)【発明の名称】 多層印刷配線板用接着シートおよびそれを用いた金属張積層板

## (57)【要約】

【目的】  $\epsilon_r$ や $\tan \delta$ が低く、安価な多層印刷配線板用接着シートおよびそれを用いた金属張積層板を提供すること。

【構成】 超高分子量ポリエチレン多孔質焼結シートに熱硬化性樹脂を含浸させ接着シートとし、前記接着シートの両面または片面に金属導体層を積層して金属張積層板とする。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 超高分子量ポリエチレン多孔質焼結シートに熱硬化性樹脂を含浸させてなる多層印刷配線板用接着シート。

【請求項2】 熱硬化性樹脂がエポキシ樹脂である請求項1記載の多層印刷配線板用接着シート。

【請求項3】 熱硬化性樹脂がポリイミド樹脂である請求項1記載の多層印刷配線板用接着シート。

【請求項4】 請求項1～3記載の多層印刷配線板用接着シートの両面または片面に金属導体層を積層した金属張積層板。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、高周波領域で使用される多層印刷配線板用の接着シートおよびそれを用いた金属張積層板に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 最近の電子工業、通信工業、コンピュータの各分野において使用される周波数は次第に高周波の領域に移行している。高周波領域では信号速度や信号の損失の回路性能への影響が大きく、使用する電気部品や印刷回路配線板に対して、高周波領域での信号速度の向上、損失の低減が求められている。回路の信号速度は配線板の誘電体の比誘電率（以下 $\epsilon_r$ とする）に依存しており、 $\epsilon_r$ の低いほど信号速度は速くなる。また、信号の損失は誘電体の $\epsilon_r$ と誘電正接（以下 $\tan \delta$ とする）に依存しており、 $\epsilon_r$ や $\tan \delta$ が低いほど損失が少なくなる。このため、高周波領域で使用される配線板の誘電体には $\epsilon_r$ や $\tan \delta$ の低いものが要求されている。また、印刷配線板は多層化が進み、高周波用印刷配線板も例外ではない。

【0003】 我々は $\epsilon_r$ や $\tan \delta$ の低い誘電体の基板として、先に特願平2-153386号、特願平2-153388号において、超高分子量ポリエチレン（以下UHMWPEと称することがある）樹脂のみの多孔質焼結シート、樹脂含浸補強層と金属導体層を組合わせた基板を提案した。さらにこれらに続いて特願平3-171552号においてスルーホールの接続信頼性向上のために、UHMWPEに下記に示すような1, 2, 3, 4, 7, 8, 9, 10, 13, 14, 14-ドデカクロロ-1, 4, 4a, 5, 6, 6a, 7, 10, 10a, 11, 12, 12a-ドデカハイドロ-1, 4, 7, 10-ジメタノジベンゾ(a,e)シクロオクテン（オキシデンタルケミカル社商品名デクロランプラス、以下商品名で表示する）を熱膨張率の低減およびスルーホールめっきの密着性向上のためのフィラーとして配合する方法を提案した。この誘電体は多孔質焼結シートと樹脂含浸補強層の積層体であるため、薄くすることが困難である。従って多層印刷配線板へ適用すると多層印刷配線板が厚くなってしまうという問題があった。

【0004】 高周波用多層印刷配線板にこれまで使用さ

れていたのは、低 $\epsilon_r$ の熱硬化性樹脂をガラス布に含浸したプリプレグであり、例えば、変性PPO樹脂を用いた特開平1-21531などが挙げられる。この場合、高 $\epsilon_r$ のガラス布を使用しているため、 $\epsilon_r$ がそれほど低くならないという欠点があった。また、ふっ素樹脂を用いる特公平3-54875号公報などや、石英の布を用いる特開昭61-235436号公報などが提案されているが、これらはいずれも材料が高価である。さらにエポキシ樹脂にポリエチレンパウダーを混合する特開昭62-95325号公報があるが、ポリエチレンの熔融粘度が低いため耐熱性が劣る。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 本発明は上述した事情に鑑みてなされてのものであって、 $\epsilon_r$ や $\tan \delta$ が低く、安価な多層印刷配線板用接着シートおよびそれを用いた金属張積層板を提供しようとするものである。

## 【0006】

【課題を解決するための手段】 上記課題について本発明者らは鋭意検討を重ねた結果、低 $\epsilon_r$ 、低 $\tan \delta$ の超高分子量ポリエチレン多孔質焼結シートに硬化していない熱硬化性樹脂を含浸させた接着シート、およびこれを用いた金属張積層板が多層印刷配線板用材料として良好であることを見出し、本発明を完成するに至った。なお本発明は、ガラス布などの補強基材を用いていないので、プリプレグと称さず接着シートという名称を用いている。

【0007】 以下、図面に基づき本発明を詳細に説明する。図1は本発明による多層印刷配線板用接着シートである。1はUHMWPEの粒子であり、焼結により連続気泡の多孔質シートを形成している。2は含浸された硬化していない熱硬化性樹脂であり、接着力保持の機能を持つ。シート中に気泡が残っているが多層化接着の際になくすることができる。図2は本発明による接着シートを用いた多層印刷配線板の多層化接着前の構成を示している。8が本発明による金属張積層板であり、7、7'が本発明による接着シートである。機械的強度を確保する必要がある時は、6、6'に示すようにガラス布補強基材と組み合わせた多層印刷配線板とすればよい。

【0008】 本発明に用いるUHMWPE多孔質焼結シートに用いられるUHMWPEは、チーグラー法重合技術により製造され、その平均分子量は粘度法による測定で100万～500万と一般のポリエチレンの2万～20万に比べて極めて大きい分子量を持つものである。例えば、三井石油化学工業（ハイゼックスミリオン、ミペロン）、旭化成工業（サンテック）、西独ヘキスト社（HOSTALEN. GUR）、米国ハーキュレス社（HIFLAX. 1000）などで上市しているものが好適に用いられる。

【0009】 UHMWPEの多孔質焼結シートはUHMWPE粉末粒子を焼結させ、粒子同士を融着により接合

し、厚み0.05~1mmに成形したものである。接合した粒子の外側には空気連続層が存在する。多層印刷配線板用接着シートとして使用することを考えると、厚み0.05~0.2mmが好ましい。

【0010】このUHMWPE多孔質焼結シートには機械強度付与、増量などのための充填剤や安定剤、難燃剤、着色剤などを添加することもできる。前述したデクロランプラスを添加すれば、 $\epsilon_r$ 、 $\tan \delta$ を増加させずにスルーホール接続信頼性を向上させることができ、誘電特性、スルーホール接続信頼性共に良好な多層印刷配線板を得ることができる。

【0011】UHMWPE多孔質焼結シートの製造法は、例えばフィルム、金属ベルトなどの基材上に必要な場合は充填剤を混合したUHMWPEの粉末粒子を投入し、これをロールやバーにより、それらと基材との間隔を一定に保つようにして得た間隙に通し、UHMWPEの粉末粒子を一定の厚みに賦形し、さらに加熱炉に通し、粒子同士を加熱焼結させる方法がある。この時UHMWPE粉末を液体中に分散させて、スリラー状で賦形してもよい。

【0012】UHMWPE粉末は平均粒子径0.001~1mmであるものが好ましい。得られるUHMWPE多孔質焼結シートの表面が平滑になるためには、平均粒子径が0.001~0.1mmであるものが特に好ましい。

【0013】含浸させる熱硬化性樹脂は、ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、フェノール樹脂、メラミン樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ポリイミド樹脂、ビスマレイミド・トリアジン樹脂、PPO樹脂もしくはPPS樹脂と架橋性ポリマー又は架橋性モノマーとの樹脂組成物が挙げられる。好ましくは $\epsilon_r$ や $\tan \delta$ が比較的低いポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ポリイミド樹脂が用いられる。コストの面からエポキシ樹脂が、耐熱性の面からポリイミド樹脂がさらに好ましい。金属導体層は、銅、白銅、青銅、黄銅等の銅合金、アルミニウム、ニッケル、鉄、ステンレス等の鉄合金、金銀、白金の箔である。好ましくは、銅箔、アルミニウム箔である。また金属箔の代わりに所定の導体が形成された銅めっき、金めっき等の導体層でもよい。これらの厚さは通常8~70 $\mu\text{m}$ である。

【0014】金属張積層板は熱プレスによる加熱加圧で積層される。この条件は通常130~250℃、印加圧力20~80kg/cm<sup>2</sup>(0.2~7.8MPa)、印加時間20~120分で行われる。

【0015】

【作用】本発明で用いたUHMWPEは低 $\epsilon_r$ 、低 $\tan \delta$ の樹脂であり、熔融粘度が高いため耐熱性が良好である。これに熱硬化性樹脂を組み合わせることにより、耐熱性および銅箔との接着性を向上でき、コストを低減できる。またガラス布を使用しないため、低 $\epsilon_r$ 、低 $\tan \delta$ とすることができ、しかも薄くできる。

【0016】

【実施例】以下、本発明を実施例に基づいて詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

【0017】実施例1~4

UHMWPE粉末にミペロンXM-220(平均粒子形0.03mm、融点136℃、嵩密度0.4g/cm<sup>3</sup>、ポリエチレンの真密度0.9g/cm<sup>3</sup>、三井石油化学工業株式会社商品名)を用い、充填剤としてデクロランプラス#25(平均粒子形0.005mm、融点350℃、嵩密度0.7g/cm<sup>3</sup>、真密度1.94g/cm<sup>3</sup>、オキシデンタルケミカル社商品名)をトルエン中に分散させた。配合量はUHMWPE100重量部に対してデクロランプラスを80重量部、トルエンを135重量部とした。これらを混合後、よく攪拌し、ガラス板上に0.2mm厚みに賦形し、125℃で10分乾燥した後、160℃で15分焼結を行い、厚み0.14mm、密度0.85g/cm<sup>3</sup>(空隙率30%)のUHMWPE多孔質焼結シートを得た。このシートに溶媒をメチルエチルケトンとメチレングリコールの1:1重量比混合液とし、ジシアンジアミドを硬化剤とした臭素化ビスフェノールA型エポキシ樹脂の溶液を含浸させ、0.14mm間隔のロッドの間隙を通過させてエポキシ樹脂溶液付着量を制御し、30分風乾させた後、170℃で3分間乾燥して厚み0.14mmの多層印刷配線板用接着シートを得た。この時170℃はUHMWPEの融点を越えているので、シートの形状を保つためにステンレスメッシュ上で乾燥を行った。エポキシ樹脂溶液の濃度は表1に示す。溶液濃度の変化により接着シート中のエポキシ樹脂量を制御した。

【0018】実施例5~8

熱硬化性樹脂に以下の配合によるポリイミド樹脂を用い、表2に示す濃度とする以外は、実施例1~4と同様にして厚み0.14mmの多層印刷配線板用接着シートを得た。ポリイミド樹脂溶液は、溶媒をメチルエチルケトンとメチルセロソロブの1:1重量比混合液とし、ジシアンジアミドを硬化剤としたフェノールノボラック型エポキシ樹脂変性ビスマレイミド樹脂の溶液とした、溶液の濃度は表1に示す。

【0019】比較例1

実施例で述べたUHMWPE焼結多孔質シートをそのまま接着シートとして用いた。

【0020】比較例2

実施例1~4のエポキシ樹脂溶液を70%の濃度とし、厚み0.1mmのガラス布に含浸した。0.12mm間隔のロッドの間隙を通過させてエポキシ樹脂溶液付着量を制御し、175℃で3分間乾燥して厚み0.12mmの多層印刷配線板用接着シートを得た。

【0021】比較例3

実施例5~8のポリイミド樹脂溶液(濃度70%)を用いる他は、比較例2と同様にして作製した。

【0022】比較例4

比較例1のシートの両面に0.05mmのガラス布を用いる他は、比較例2と同様にして得たプリプレグを配置し、175℃、0.2MPaで10分熱プレスを行い、厚み0.3mmの多層印刷配線板用接着シートを得た。

【0023】実施例、比較例で得たシートの多層印刷配線板用接着シートとしての特性を調べるために、平滑面を黒化処理した銅箔を黒化処理面を内側にして両面に配置し、175℃、0.2MPaで1.5時間熱プレスを行い、熱硬化性樹脂を硬化させ、接着シート中に残った気孔を消滅させると同時に銅箔と接着させた。この試料\*10

\*の銅箔引きはがし強さを測定した。また、金属張積層板としての特性を調べるために、銅箔粗化面を内側にして両面に配置し、上述した条件で熱プレスし、金属張積層板を作製し、銅箔引きはがし強さを測定した。さらに銅箔をエッチングにより除去した試料を空洞共振器により、 $\epsilon_r$ 、 $\tan \delta$ を測定した。この銅箔除去試料の厚みをマイクロメータで測定した。結果を表1、2に示す。

【0024】

【表1】

表1 エポキシ樹脂を用いた実施例および比較例の配合と特性

項目		実施例				比較例		
		1	2	3	4	1	2	4
樹脂濃度 (%)		70	50	30	10	——	70	——
銅箔引き がし強さ (N/m)	平滑面							
	黒化処理	0.90	0.88	0.84	0.82	0.80	1.00	1.00
	粗化面	1.75	1.50	1.20	0.80	0.40	1.90	1.90
$\epsilon_r / \tan \delta$ ( $\times 10^{-4}$ )		2.55 /83	2.52 /74	2.48 /45	2.46 /21	2.40 /3	4.44 /160	2.70 /70
厚さ (mm)		0.096	0.092	0.088	0.084	0.080	0.110	0.200

【0025】

【表2】

表2 ポリイミド樹脂を用いた実施例および比較例の配合と特性

項目		実施例				比較例	
		5	6	7	8	1	3
樹脂濃度 (%)		70	50	30	10	——	70
銅箔引き がし強さ (N/m)	平滑面						
	黒化処理	0.89	0.87	0.85	0.83	0.80	0.95
	粗化面	1.60	1.45	1.05	0.75	0.40	1.70
$\epsilon_r / \tan \delta$ ( $\times 10^{-4}$ )		2.54 /80	2.52 /75	2.47 /44	2.46 /19	2.40 /3	4.40 /155
厚さ (mm)		0.097	0.092	0.089	0.084	0.080	0.110

【0026】比較例2、3に示すガラスエポキシ、ガラスポリイミドプリプレグと比べると実施例は $\epsilon_r$ が特に低く、 $\tan \delta$ も低い。比較例1の接着シートと比べると粗化面の引きはがし強さが大きく、金属張積層板としての特性がよい。またガラスエポキシプリプレグとUH MWP Eシートの積層物の比較例4と比べると、厚みが薄い。

【0027】

【発明の効果】実施例で述べたように本発明により、 $\epsilon_r$ 、 $\tan \delta$ が低く、薄くて引きはがし強さの大きい多層印刷配線板用接着シートおよび金属張積層板を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

50 【図1】本発明による多層印刷配線板用接着シートの断

面図である。

【図2】本発明による接着シートを用いた多層印刷配線板の多層化接着前の構成を示す断面図である。

【符号の説明】

1 UHMWPEの粒子よりなる連続気泡の多孔質シート

2 含浸された硬化していない熱硬化性樹脂

3 金属導体層 4, 4' 硬化した熱硬化性樹脂

5 ガラス布 6, 6' ガラス布補強基材

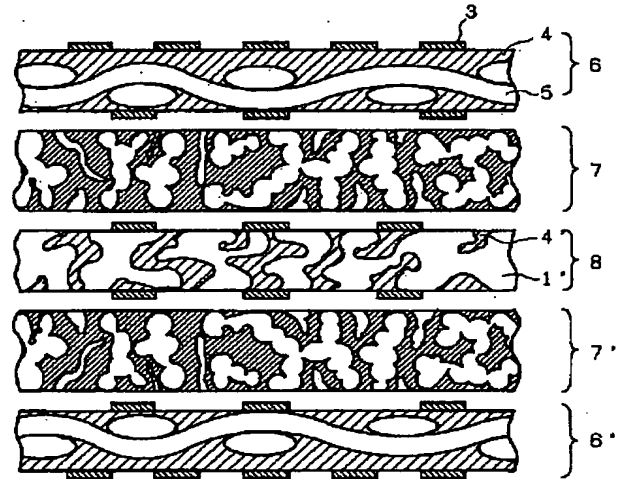
7, 7' 本発明による接着シート

8 本発明にかかる金属張積層板

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 山口 豊

茨城県下館市大字小川1500番地 日立化成  
工業株式会社下館研究所内